

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-264622
(43)Date of publication of application : 26.09.2000

(51)Int.Cl. C01B 33/18
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 11-065066 (71)Applicant : DENKI KAGAKU KOGYO KK
(22)Date of filing : 11.03.1999 (72)Inventor : ZENBA KIYONARI
MIZUTANI SUSUMU
KOBAYASHI AKIRA

(54) PRODUCTION OF SPHERICAL SILICA POWDER

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To readily produce a spherical silica powder having a large average particle diameter while enhancing the sphericity.

SOLUTION: This method for producing spherical silica powder by jetting a raw material for the silica powder into a flame comprises mixing the raw material for the silica powder having a particle distribution of 20–80 μm average particle diameter d_{50} , $\geq 10 \mu\text{m}$ 10%-accumulated particle diameter d_{10} and ≤ 5 ratio of d_{90}/d_{10} (d_{90} is the 90%-accumulated particle diameter), with a carrier gas, and jetting the mixed materials at 5–40 m/s gas flow rate. Especially, the raw material for the silica powder is jetted between the inner flame and the outer flame.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 09.12.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-264622

(P2000-264622A)

(43)公開日 平成12年9月26日 (2000.9.26)

(51)Int.Cl.
C 01 B 33/18
H 01 L 23/29
23/31

識別記号

F I
C 01 B 33/18
H 01 L 23/30

テマコード(参考)
Z 4 G 072
R 4 M 109

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全4頁)

(21)出願番号 特願平11-65066

(22)出願日 平成11年3月11日 (1999.3.11)

(71)出願人 000003296

電気化学工業株式会社
東京都千代田区有楽町1丁目4番1号

(72)発明者 善場 研也

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株
式会社大牟田工場内

(72)発明者 水谷 晋

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株
式会社大牟田工場内

(72)発明者 小林 晃

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株
式会社大牟田工場内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 球状シリカ粉末の製造方法

(57)【要約】

【課題】平均粒径の大きな球状シリカ粉末をその球形度を高めて容易に製造すること。

【解決手段】火炎中にシリカ粉末原料を噴射して球状シリカ粉末を製造する方法において、上記シリカ粉末原料が、平均粒径 $d_{50} = 20 \sim 80 \mu\text{m}$ 、累積 10% 粒子径 $d_{10} = 10 \mu\text{m}$ 以上、 $d_{90}/d_{10} \leq 5$ (但し、 d_{90} は累積 90% 粒子径である。) の粒度分布を有し、それをキャリアガスに混入させ、そのガス流速を 1.5 ~ 4.0 m/s にして噴射することを特徴とする球状シリカ粉末の製造方法であり、特に、内炎と外炎との間にシリカ粉末原料を噴射することを特徴とするものである。

*** NOTICES ***

JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] In the approach of injecting the charge of silica powder Suehara and manufacturing spherical silica powder in a flame The above-mentioned charge of silica powder Suehara is mean-particle-diameter $d_{50}=20-80$ micrometer, more than accumulation 10% particle diameter $d_{10}=10$ micrometer, and $d_{90}/d_{10} \leq 5$ (however, d_{90} is 90% particle diameter of accumulation.). The manufacture approach of the spherical silica powder characterized by having particle size distribution, making it mix in carrier gas, carrying out [s] the gas flow rate in 15-40m /, and injecting it.

[Claim 2] The manufacture approach of the spherical silica powder according to claim 1 characterized by injecting the charge of silica powder Suehara between an inner flame and an outer flame.

[Claim 3] The manufacture approach of the spherical silica powder according to claim 2 characterized by the degree of sphericity in 45-80 micrometers of spherical silica powder being 0.9 or more.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and NCIPPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the manufacture approach of the suitable spherical silica powder for the filler for semi-conductor resin seals.

[0002]

[Description of the Prior Art] What fused the silica with high purity at the elevated temperature, and was cooled has the amorphous network structure, and since it is low expansibility, thermal shock resistance, and low-heat conductivity, it is used as a heat-resisting material. Moreover, the powder also has stable and high insulation chemically, since there is also little RF dielectric loss, it is used as a filler for semi-conductor closure resin, and especially the spherical thing is useful to improvement in a fluidity or restoration nature. Since the thing near a real ball is excellent in restoration nature, a fluidity, and metal mold-proof abrasiveness especially, the high filler of a degree of sphericity has been pursued.

[0003] Generally, when carrying out melting balling-up of the crushing article raw materials, such as a silica, if the fines particle in a raw material is independent, it cannot spheroidize easily, and fines particles or a fines particle, and a coarse powder particle carry out fusion association, and it turns into a coarse particle from a raw material in many cases. Moreover, since it is hard to fuse a coarse powder particle compared with a fines particle, the longer flame residence time is needed.

[0004] Therefore, if the raw material ground more coarsely is only used when manufacturing a high degree-of-sphericity filler with a coarse grain size, the degree of sphericity of the obtained particle will fall by the fusion of a fines particle and a coarse powder particle. Furthermore, depending on the rate of flow of the carrier gas in which silica raw material powder was made to mix, melting spheroidizing [of a coarse powder particle] becomes inadequate.

[0005] Although making 3 - 60 m/s and a combustion flame gas flow rate into 30 - 200 m/s for the carrier gas rate of flow of the melting raw material in a melting raw material exhaust nozzle is proposed in the JP,6-56445,A official report in order to solve this problem, no consideration is made about the fall of the degree of sphericity by fusion. In case the charge of silica powder Suehara which contains a coarse particle 45 micrometers or more especially is spheroidized, nothing is indicated about the fall improvement of the degree of sphericity by fusion.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention is made in view of the above, and the purpose is raising spherical fused silica powder with big mean particle diameter, and manufacturing the degree of sphericity for it easily.

[0007]

[Means for Achieving the Goal] The technical problem of this invention can rationalize the particle size distribution and jet velocity of the charge of silica powder Suehara which are injected by the flame, and can attain them by optimizing a melting condition.

[0008] Namely, this invention is set to the approach of injecting the charge of silica powder Suehara and manufacturing spherical silica powder in a flame. The above-mentioned charge of silica powder Suehara is mean-particle-diameter $d_{50}=20-80$ micrometer, more than accumulation 10% particle diameter $d_{10}=10$ micrometer, and $d_{90}/d_{10} \leq 5$ (however, d_{90} is 90% particle diameter of accumulation.). It is the manufacture approach of the spherical silica powder characterized by having

particle size distribution, making it mix in carrier gas, making the gas flow rate into 15 - 40 m/s, and injecting it, and is characterized by injecting the charge of silica powder Suehara between an inner flame and an outer flame especially. The degree of sphericity of the powder in the particle size of 45-80 micrometers is especially suitable for the manufacture approach of this invention for obtaining the spherical silica powder which is 0.9 or more.

[0009]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained in more detail.

[0010] The silica powder of the raw material used by this invention grinds the silica which uses comparatively good SiO₂ as a principal component, Xtal, silica sand, etc. with means, such as a vibration mill, performs two classifications or more preferably, and is obtained.

[0011] In this invention, the big description is in the particle size distribution of the charge of silica powder Suehara, mean particle diameter d₅₀ is 20-80 micrometers, and it is that it is important that 10 micrometers or more of 10% particle diameter d₁₀ of accumulation are 20 micrometers or more preferably, and it moreover fills d₉₀/d₁₀ <= 5.

[0012] Spheroidizing [of a particle] will become inadequate, if the distribution at the time of raw material injection worsens [the mean particle diameter d₅₀ of the charge of silica powder Suehara] by less than 20 micrometers, a degree of sphericity falls and 80 micrometers is surpassed. The rate of a particle that on the other hand the 10% particle diameter d₁₀ of accumulation can spheroidize if the rate of a fines particle increases, the rate which it and a coarse powder particle fuse increases, and the fall of a degree of sphericity is caused in less than 10 micrometers and d₉₀/d₁₀ surpass 5 decreases, and the rate of acquisition of the fused silica powder with a particle size of 45-80 micrometers of a high degree of sphericity falls. It becomes impossible for neither of the cases to manufacture easily the spherical fused silica powder of a high degree of sphericity with big mean particle diameter these results. As for the particle which surpasses 80 micrometers generated by grain refining of the charge of silica powder Suehara, or the obtained classification of spherical fused silica powder, in this invention, it is desirable to return and carry out a reuse to a raw material process.

[0013] 1.8 micrometers and d₉₀/d₁₀ have [a conventional typical example / 17 micrometers and the 10% particle diameter d₁₀ of accumulation] mean particle diameter d₅₀ specific [the particle size distribution of a charge of silica powder Suehara like this invention] compared with having been about 34.

[0014] The charge of silica powder Suehara mixes those, such as oxygen gas, in carrier gas, and melting spheroidizing is injected and carried out into a flame, and it serves as powder of a high degree of sphericity. Formation of a flame is performed by inflammable gas and assistant ** gas, such as oxygen and air, and acetylene, ethylene, a propane, butane, etc. are used as combustible gas.

[0015] In this invention, in case it is made to mix in carrier gas and the charge of silica powder Suehara is injected, it is that it is important to make desirable the carrier gas rate of flow in 20-30m/s 15 to 40 m/s. These conditions differ remarkably compared with a conventional typical example having been 48 m/s extent. If the carrier gas rate of flow causes trouble to raw material injection in less than 15 m/s, and raw material plugging increases by the burner and 40 m/s is surpassed, the flame residence time will become short and it will become inadequate melting spheroidizing it.

[0016] As for the injection approach of the charge of silica powder Suehara, it is more desirable to make it inject among both flames in the inner flame and outer flame which are formed on a concentric circle rather than making the core of the flame formed in concentric circular inject. By this, even if a silica particle becomes easy to contact a flame and is a charge of silica powder Suehara with a big particle size, a degree of sphericity becomes high and the rate's of melting improves.

[0017] The manufacture approach of this invention is suitable for the degree of sphericity in the particle size of 45-80 micrometers especially to obtain 0.9 or more spherical silica powder, and such spherical silica powder has an application as a filler of the resin constituent for the semiconductor chip closures, and becomes possible [raising the high fluidity of resin, and high intensity more than before].

[0018] The degree of sphericity as used in the field of this invention can be measured as follows using a scanning electron microscope (for example, the "JSM-T200 mold" by JEOL Co., Ltd.), and image-analysis equipment (for example, Nippon Avionics Co., Ltd. make).

[0019] That is, the projected area (A) and the boundary length (PM) of a particle are measured from

the SEM photograph of a sample. If area of the perfect circle corresponding to a boundary length (PM) is set to (B), the degree of sphericity of the particle can be displayed as A/B. Then, when a perfect circle with the same boundary length as the boundary length (PM) of a sample particle is assumed, since it is $PM=2\pi r$ and $B=\pi r^2$, it is $B=\pi \times (PM/2\pi)^2$. It becomes and the degree of sphericity of each particle can be computed as degree-of-sphericity = $A/B = A \times 4\pi/2$. Then, the degree of sphericity of the spherical silica powder which is the aggregate of a spherical silica particle shall measure about 1000 particles chosen as arbitration from spherical silica powder, and shall be represented with the average.

[0020] Moreover, using powder X-ray diffractometer (for example, product made from RIGAKU "Mini Flex"), 2theta of CuK alpha rays can analyze a sample by X-ray diffraction in the range which is 26 degrees - 27.5 degrees, and can measure the rate of melting which is the index of melting balling-up from the intensity ratio of a specific diffraction peak. That is, a crystal silica does not exist in this location in fused silica, although the main peak exists in 26.7 degrees. the ratio of the X-ray intensity [as opposed to / if fused silica and a crystal silica are intermingled, since the peak height of 26.7 degrees according to those rates will be obtained / the X-ray intensity of a crystal silica standard sample] of a sample to a crystal silica mixed ratio of land use (X-ray intensity of the X-ray intensity / crystal silica of a sample) -- computing -- a formula and rate (%) of melting = $(1 - \text{crystal silica mixed ratio of land use}) \times 100$ -- since -- it can ask for the rate of melting.

[0021] Moreover, the particle size distribution in this invention are the values which distributed 0.3g of samples in water, and were measured by the laser diffraction type particle-size-distribution measuring device (the C lath GURANYURO meter "a model 715").

[0022]

[Example] Hereafter, an example and the example of a comparison are given and this invention is explained still more concretely.

[0023] The equipment used in the example consists of formation of an inner flame and an outer flame, a vertical-type melting furnace with which the burner which can perform injection of the charge of silica powder Suehara was installed among both flames, and an uptake system of the obtained spherical silica powder. The field in which the flame is formed is a melting zone, there is a cooling zone where cooling solidification of a melting particle is performed following it, and the air for cooling can be supplied now from near the end of a melting zone. In an uptake system, uptake machines, such as a gravity settling chamber, a cyclone, and a bag filter, are installed, and the particle according to the engine performance of those uptake machines is gradually acquired.

[0024] One to examples 1-6 and example of comparison 5 silica was pulverized in mean particle diameter of about 20 micrometers by the vibration mill. The air classifier which consisted of Rhine of a two-set serial in this silica powder removed coarse powder and fines, and the charge of silica powder Suehara which has various particle size distributions was adjusted. Oxygen was made into carrier gas for this charge of silica powder Suehara, that rate of flow was injected as conditions shown in Table 1 between an inner flame and outer flames (examples 1-5, examples 1-5 of a comparison), or at the core (example 6) of a flame, and spheroidizing was performed. The screen analysis opium poppy, the rate of acquisition of the bottom particle of 80 micrometers and the rate of melting, and the degree of sphericity of a particle-size the particle of 45-80 micrometers were measured for the spherical silica powder by which uptake was carried out from the gravity settling chamber. Those results are shown in Table 1.

[0025]

[Table 1]

| | 実施例 | | | | | | 比較例 | | | | |
|-----------------|------|------|------|------|------|-------|------|------|------|------|------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
| d 50 (μm) | 29 | 30 | 32 | 52 | 52 | 52 | 31 | 30 | 32 | 32 | 85 |
| d 10 (μm) | 17 | 17 | 22 | 21 | 21 | 21 | 22 | 22 | 9 | 22 | 32 |
| d 90 / d 10 | 4.6 | 4.5 | 4.5 | 4.8 | 4.8 | 4.8 | 4.6 | 4.6 | 4.5 | 5.4 | 4.8 |
| キャリアガス流速 (m/s) | 20 | 28 | 28 | 28 | 37 | 28 | 13 | 45 | 28 | 28 | 28 |
| 原料噴射方法 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の中心 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 |
| 80 μm下粒子の收得率(%) | 85.2 | 86.5 | 86.4 | 75.3 | 74.8 | 74.7 | 71.9 | 85.4 | 84.7 | 68.2 | 47.3 |
| 45~80 μm粒子の球形度 | 0.91 | 0.92 | 0.94 | 0.95 | 0.91 | 0.85 | 0.80 | 0.86 | 0.83 | 0.94 | 0.90 |
| 80 μm下粒子の溶融率(%) | 98.7 | 98.5 | 98.8 | 98.8 | 97.5 | 98.0 | 88.2 | 92.3 | 98.4 | 98.8 | 98.2 |

[0026] Table 1 shows the following things.

[0027] About the carrier gas rate of flow, when it is 15 - 40 m/s, it is 0.9 or more degrees of sphericity and 97% or more of rates of melting, and moreover, the rate of acquisition of the bottom particle of 80 micrometers improved (examples 1-5). On the other hand, when the carrier gas rate of flow surpassed 40 m/s, since the flame residence time was short, the rate of melting fell (example 2 of a comparison), and trouble was caused to raw material injection as they are less than 15 m/s, raw material plugging happened frequently by the burner, and both the rate of acquisition of the bottom particle of 80 micrometers, the degree of sphericity, and the rate of melting fell (example 1 of a comparison).

[0028] About the particle size distribution of the charge of silica powder Suehara, in less than 10 micrometers, since there were many fines particles, the 10% particle diameter d10 of accumulation fused with the coarse powder particle, the degree of sphericity fell, and hypertrophy also advanced (example 3 of a comparison). Moreover, when d90/d10 surpassed 5 (example 4 of a comparison) and mean particle diameter surpassed 80 micrometers (example 5 of a comparison), the rate of acquisition of the bottom particle of 80 micrometers fell sharply.

[0029] Although the example 6 was performed according to the example 4 except having injected the charge of silica powder Suehara at the core of a flame, only in the part which did not inject between the inner flame and the outer flame, the degree of sphericity and the rate of melting became low rather than the example 4.

[0030]

[Effect of the Invention] According to this invention, the degree of sphericity can be raised and spherical silica powder with big mean particle diameter can be manufactured easily.

[Translation done.]

【特許請求の範囲】

【請求項1】火炎中にシリカ粉末原料を噴射して球状シリカ粉末を製造する方法において、上記シリカ粉末原料が、平均粒径 $d_{50} = 20 \sim 80 \mu\text{m}$ 、累積10%粒子径 $d_{10} = 10 \mu\text{m}$ 以上、 $d_{90}/d_{10} \leq 5$ （但し、 d_{90} は累積90%粒子径である。）の粒度分布を有し、それをキャリアガスに混入させ、そのガス流速を $1.5 \sim 4.0 \text{ m/s}$ にして噴射することを特徴とする球状シリカ粉末の製造方法。

【請求項2】内炎と外炎との間にシリカ粉末原料を噴射することを特徴とする請求項1記載の球状シリカ粉末の製造方法。

【請求項3】球状シリカ粉末の $4.5 \sim 8.0 \mu\text{m}$ における球形度が0.9以上であることを特徴とする請求項2記載の球状シリカ粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、半導体樹脂封止用充填材に好適な球状シリカ粉末の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】純度の高いシリカを高温で溶融し冷却したものは、非晶質網目構造を持ち、低膨脹性、耐熱衝撃性、低熱伝導性があるので耐熱材料として用いられている。また、その粉末も化学的に安定で高い絶縁性を持ち、高周波誘電体損失も少ないとから、半導体封止樹脂用フィラーとして用いられ、特に球状のものは流動性や充填性の向上に役立っている。中でも、真球に近いものほど充填性、流動性、耐金型摩耗性に優れているので、球形度の高いフィラーが追求されてきている。

【0003】一般に、シリカ等の破碎品原料を溶融球状化する場合、原料中の微粉粒子は単独では球状化にくく、微粉粒子同士あるいは微粉粒子と粗粉粒子が合着結合して、原料よりも粗い粒子になることが多い。また、粗粉粒子は微粉粒子に比べて溶融しにくいため、より長い火炎滞留時間が必要となる。

【0004】そのため、粒度の粗い高球形度フィラーを製造する場合、粗めに粉碎した原料を単に用いると、微粉粒子と粗粉粒子の合着により、得られた粒子の球形度が低下してしまう。更には、シリカ原料粉末を混入させたキャリアガスの流速によっては、粗粉粒子の溶融球状化が不十分となる。

【0005】この問題を解消するため、特開平6-56445公報では、溶融原料噴出口における溶融原料のキャリアガス流速を $3 \sim 6.0 \text{ m/s}$ 、燃焼火炎ガス流速を $3.0 \sim 2.0 \text{ m/s}$ とすることが提案されているが、合着による球形度の低下については何の配慮もなされていない。特に、 $4.5 \mu\text{m}$ 以上の粗い粒子を含むシリカ粉末原料の球状化を行う際、合着による球形度の低下改善については何も記載されていない。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記に鑑みてなされたものであり、その目的は、平均粒径の大きな球状溶融シリカ粉末をその球形度を高めて容易に製造することである。

【0007】

【課題を達成するための手段】本発明の課題は、火炎に噴射されるシリカ粉末原料の粒度分布と噴射速度を適正化し、溶融状態を最適化することによって達成することができる。

10 【0008】すなわち、本発明は、火炎中にシリカ粉末原料を噴射して球状シリカ粉末を製造する方法において、上記シリカ粉末原料が、平均粒径 $d_{50} = 20 \sim 80 \mu\text{m}$ 、累積10%粒子径 $d_{10} = 10 \mu\text{m}$ 以上、 $d_{90}/d_{10} \leq 5$ （但し、 d_{90} は累積90%粒子径である。）の粒度分布を有し、それをキャリアガスに混入させ、そのガス流速を $1.5 \sim 4.0 \text{ m/s}$ にして噴射することを特徴とする球状シリカ粉末の製造方法であり、特に、内炎と外炎との間にシリカ粉末原料を噴射することを特徴とするものである。本発明の製造方法は、粒径 $4.5 \sim 8.0 \mu\text{m}$ における粉末の球形度が0.9以上である球状シリカ粉末を得るのに特に好適なものである。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、更に詳しく本発明について説明する。

【0010】本発明で使用される原料のシリカ粉末は、比較的の良質の SiO_2 を主成分とする珪石、水晶、珪砂等を振動ミル等の手段で粉碎し、好ましくは2回以上の分級を行って得られたものである。

30 【0011】本発明においては、そのシリカ粉末原料の粒度分布に大きな特徴があり、平均粒径 d_{50} が $20 \sim 80 \mu\text{m}$ で、累積10%粒子径 d_{10} が $10 \mu\text{m}$ 以上、好ましくは $20 \mu\text{m}$ 以上であり、しかも $d_{90}/d_{10} \leq 5$ を満たすことが重要なことである。

【0012】シリカ粉末原料の平均粒径 d_{50} が $20 \mu\text{m}$ 未満では、原料噴射時の分散が悪くなり球形度が低下し、 $80 \mu\text{m}$ をこえると、粒子の球状化が不十分となる。一方、累積10%粒子径 d_{10} が $10 \mu\text{m}$ 未満では、微粉粒子の割合が多くなり、それと粗粉粒子とが合着する割合が多くなって、球形度の低下を招き、また $d_{90}/d_{10} \leq 5$ をこえると、球状化できる粒子の割合が少くなり、粒径 $4.5 \sim 8.0 \mu\text{m}$ の高球形度の溶融シリカ粉末の収得率が低下する。これらの結果、いずれの場合も、平均粒径の大きな、高球形度の球状溶融シリカ粉末を容易に製造することができなくなる。本発明においては、シリカ粉末原料の粒度調整ないしは得られた球状溶融シリカ粉末の分級によって生成した $80 \mu\text{m}$ をこえる粒子は、原料工程に戻して再使用されることが望ましい。

40 【0013】本発明のようなシリカ粉末原料の粒度分布は、従来の代表的な一例が、平均粒径 d_{50} が $17 \mu\text{m}$ で、累積10%粒子径 d_{10} が $10 \mu\text{m}$ 以上、 $d_{90}/d_{10} \leq 5$ を満たすが、その球形度が0.9以上である。しかし、この球形度は、球状溶融シリカ粉末の球形度を高めるために、火炎中に噴射するシリカ粉末原料の粒度分布を適正化するための手段として、本発明の特徴である。

m、累積10%粒子径d10が1.8μm、d90/d10が34程度であったことと比べて特異的である。

【0014】シリカ粉末原料は、酸素ガス等のをキャリアガスに混入して火炎中に噴射され、溶融球状化処理されて高球形度の粉末となる。火炎の形成は、可燃性ガスと、酸素、空気等の助燃ガスによって行われ、可燃ガスとしては、アセチレン、エチレン、プロパン、ブタン等が使用される。

【0015】本発明においては、シリカ粉末原料をキャリアガスに混入させて噴射する際、そのキャリアガス流速を15～40m/s、好ましくは20～30m/sとすることが重要なことである。この条件は、従来の代表的な一例が、48m/s程度であったことと比べて著しく異なっている。キャリアガス流速が15m/s未満では、原料噴射に支障を来しバーナーで原料詰まりが多くなり、また、40m/sをこえると、火炎滞留時間が短くなり、溶融球状化が不十分となる。

【0016】シリカ粉末原料の噴射方法は、同心円状に形成される火炎の中心に噴射せらるよりは、同心円上に形成される内炎と外炎において、両火炎の間に噴射せらるることが好ましい。これによって、シリカ粒子が火炎と接触し易くなり、粒径の大きなシリカ粉末原料であっても球形度が高くなり、溶融率も向上する。

【0017】本発明の製造方法は、粒径45～80μmにおける球形度が0.9以上の球状シリカ粉末を得るのに特に好適であり、このような球状シリカ粉末は、半導体チップ封止用樹脂組成物のフィラーとしての用途があり、樹脂の高流動性と高強度を従来以上に高めることが可能となる。

【0018】本発明でいう球形度は、走査型電子顕微鏡（例えば、日本電子社製「JSM-T200型」）と画像解析装置（例えば、日本アピオニクス社製）を用い、次のようにして測定することができる。

【0019】すなわち、試料のSEM写真から粒子の投影面積（A）と周囲長（PM）を測定する。周囲長（PM）に対応する真円の面積を（B）とすると、その粒子の球形度はA/Bとして表示できる。そこで、試料粒子の周囲長（PM）と同一の周囲長を持つ真円を想定すると、 $PM = 2\pi r$ 、 $B = \pi r^2$ であるから、 $B = \pi \times (PM/2\pi)^2$ となり、個々の粒子の球形度は、球形度 = $A/B = A \times 4\pi / (PM)^2$ として算出することができる。そこで、球状シリカ粒子の集合体である球状シリカ粉末の球形度は、球状シリカ粉末から任意に選んだ1000個の粒子について測定し、その平均値で代表させるものとする。

【0020】また、溶融球状化の指標である溶融率は、粉末X線回折装置（例えば、RIGAKU社製「Miniflex」）を用い、CuK α 線の2θが26°～27.5°の範囲において試料のX線回折分析を行い、特定回折ピークの強度比から測定することができる。すなわち、結晶シリカは、26.7°に主ピークが存在するが、溶融シリカではこの位置には存在しない。溶融シリカと結晶シリカが混在していると、それらの割合に応じた26.7°のピーク高さが得られるので、結晶シリカ標準試料のX線強度に対する試料のX線強度の比から、結晶シリカ混在率（試料のX線強度/結晶シリカのX線強度）を算出し、式、溶融率（%） = (1 - 結晶シリカ混在率) × 100、から溶融率を求めることができる。

10 【0021】また、本発明における粒度分布は、試料0.3gを水に分散し、レーザー回折式粒度分布測定装置（シーラスグラニュロメーター「モデル715」）によって測定された値である。

【0022】20 【実施例】以下、実施例、比較例をあげて更に具体的に本発明を説明する。

【0023】実施例で用いた装置は、内炎と外炎の形成と、両火炎の間にシリカ粉末原料の噴射とを行うことができるバーナーの設置された豊型溶融炉と、得られた球状シリカ粉末の捕集系とから構成されている。火炎が形成されている領域が溶融ゾーンであり、それに統いて溶融粒子の冷却固化の行われる冷却ゾーンがあり、溶融ゾーンの終わり付近から冷却用空気が供給できるようになっている。捕集系には、重力沈降室、サイクロン、バグ30 フィルター等の捕集機が設置され、それらの捕集機の性能に応じた粒子が段階的に取得される。

【0024】実施例1～6、比較例1～5
40 硅石を振動ミルにより平均粒径20μm程度に微粉碎した。このシリカ粉末を、二台直列のラインで構成された空気分級機で粗粉と微粉を除去し、種々の粒度分布を有するシリカ粉末原料を調整した。このシリカ粉末原料を、酸素をキャリアガスとし、その流速を表1に示される条件として、内炎と外炎の間（実施例1～5、比較例1～5）又は火炎の中心（実施例6）に噴射して球状化処理を行った。重力沈降室より捕集された球状シリカ粉末を篩分けし、80μm下粒子の取得率と溶融率、及び粒径45～80μm粒子の球形度を測定した。それらの結果を表1に示す。

【0025】

【表1】

| | 実施例 | | | | | | 比較例 | | | | |
|----------------------|------|------|------|------|------|-------|------|------|------|------|------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
| d 50 (μm) | 29 | 30 | 32 | 52 | 52 | 52 | 31 | 30 | 32 | 32 | 85 |
| d 10 (μm) | 17 | 17 | 22 | 21 | 21 | 21 | 22 | 22 | 9 | 22 | 32 |
| d 90 / d 10 | 4.6 | 4.5 | 4.5 | 4.8 | 4.8 | 4.8 | 4.6 | 4.6 | 4.5 | 5.4 | 4.8 |
| キャリアガス流速 (m/s) | 20 | 28 | 28 | 28 | 37 | 28 | 13 | 45 | 28 | 28 | 28 |
| 原料噴射方法 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の中心 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 | 火炎の間 |
| 80 μm下粒子 の収得率 (%) | 85.2 | 86.5 | 86.4 | 75.3 | 74.8 | 74.7 | 71.9 | 85.4 | 84.7 | 68.2 | 47.3 |
| 45~80 μm粒子 の球形度 | 0.91 | 0.92 | 0.94 | 0.95 | 0.91 | 0.85 | 0.80 | 0.86 | 0.83 | 0.94 | 0.90 |
| 80 μm下粒子 の溶融率 (%) | 98.7 | 98.5 | 98.8 | 98.8 | 97.5 | 98.0 | 88.2 | 92.3 | 98.4 | 98.8 | 98.2 |

【0026】表1から、以下のことわざわかる。

【0027】キャリアガス流速については、それが1.5~4.0 m/sである場合において、球形度0.9以上、溶融率97%以上で、しかも80 μm下粒子の収得率が向上した(実施例1~5)。これに対し、キャリアガス流速が4.0 m/sをこえると、火炎滞留時間が短いため、溶融率は低下し(比較例2)、また1.5 m/s未満であると、原料噴射に支障を来しバーナーで原料詰まりが頻繁に起り、80 μm下粒子の収得率、球形度、溶融率がともに低下した(比較例1)。

【0028】シリカ粉末原料の粒度分布については、累積10%粒子径d10が1.0 μm未満では、微粉粒子が多いため、粗粉粒子と合着し球形度が低下し、肥大化も*

*進行した(比較例3)。また、d90/d10が5をこえる場合(比較例4)、平均粒径が80 μmをこえる場合(比較例5)には、80 μm下粒子の収得率が大幅に低下した。

【0029】実施例6は、シリカ粉末原料を火炎の中心に噴射したこと以外は、実施例4に準じて行ったものであるが、内炎と外炎との間に噴射を行わなかった分だけ、実施例4よりも球形度と溶融率が低くなった。

【0030】

【発明の効果】本発明によれば、平均粒径の大きな球状シリカ粉末をその球形度を高めて容易に製造することができる。

フロントページの続き

F ターム(参考) 4G072 AA25 BB05 DD03 GG03 LL05
MM38 MM40 TT01 TT02 UU01
UU09
4M109 AA01 EB13 EB16

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.